BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND

BEST AVAILABLE COPY



REC'D 2 1 SEP 2004

WIPO PCT

Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen:

103 37 998.3

Anmeldetag:

19. August 2003

Anmelder/Inhaber:

BASF Aktiengesellschaft, 67063 Ludwigshafen/DE

Bezeichnung:

Verfahren zum Befüllen eines vertikalen Rohres mit

Katalysatorteilchen

IPC:

B 01 J 8/00

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 23. Juli 2004

Deutsches Patent- und Markenamt

Der Präsident
Im Auftrag

PRIORITY DOCUMENT

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

SLe

Stremma

Verfahren zum Befüllen eines vertikalen Rohres mit Katalysatorteilchen

20030053

Beschreibung

20

25

30

Die vorliegende Erfindung betrifft ein Verfahren zum Befüllen eines vertikalen Rohres mit Katalysatorteilchen. Derartige Katalysator-gefüllte Rohre dienen der Durchführung verschiedener katalytischer Gasphasenreaktionen. In Abhängigkeit von der Art der katalysierten Reaktion werden die Rohre von außen beheizt oder sind zur Abfuhr von Wärme mit einem Wärmetauschmedium wie einer Salzschmelze umgeben. Die Katalysatorteilchen bestehen entweder aus einer katalytisch aktiven Masse, die – gegebenenfalls unter Verwendung geeigneter Bindemittel – durch Strangpressen, Tablettieren oder dergleichen zu Formkörpern geformt ist (so genannte Vollkatalysatoren), oder sie umfassen eine katalytisch aktive Masse, die schalenförmig auf einen inerten Träger aufgebracht ist (so genannte Schalenkatalysatoren). Sie können in Form von Kugeln, Ringen, Zylindern, Würfeln, Quadern oder anderen geometrischen Körpern vorliegen.

Beim Einfüllen der Katalysatorteilchen in das Rohr können aufgrund der mechanischen Belastung - je nach Seitendruckfestigkeit und Bruchfestigkeit der verwendeten Katalysatoren – Katalysatorteilchen zerbrechen oder die katalytisch aktive Masse teilweise vom Träger gelöst werden. Die sich bildenden Bruchstücke bzw. der Abrieb verdichten die Katalysatorschüttung und führen beim späteren Betrieb der Rohrreaktoren nachteiligerweise zu erhöhten Druckverlusten.

Es ist daher vorgeschlagen worden, die Fallgeschwindigkeit der Katalysatorteilchen beim Einfüllen durch Verwendung bestimmter Einfüllhilfen abzubremsen. So beschreibt die EP-A 548 999 ein Verfahren zum Befüllen von Rohren, bei dem die Katalysatorteilchen entlang einer Schnur eingefüllt werden, welche flexible Borsten aufweist, die sich in Querrichtung erstrecken und beabstandet zueinander sind.

Ein weiteres Verfahren zum Einfüllen von Katalysatorteilchen in ein Rohr ist in der US 3,608,751 beschrieben. Bei der hier verwendeten Füllhilfe handelt es sich um einen flexiblen Körper z. B. ein Hanfseil, an dem schrägstehende Flügel befestigt sind.

Obgleich sich die bekannten Verfahren gut zur Befüllung von Steam-Reformer-Rohren eignen, die typischerweise einen Innendurchmesser von etwa 10 cm aufweisen, sind sie für Rohre mit geringeren Innendurchmessern, wie sie üblicherweise für exotherme Gasphasenreaktionen, insbesondere Gasphasenoxidationen verwendet werden, nicht geeignet. Bereits das Einführen der Borsten oder Flügel aufweisenden Schnur in ein

AE 20030053 M/44077

19.08.2003

enges Rohr ist massiv erschwert. Außerdem führen die Borsten bzw. Flügel der bekannten Füllhilfen kleinen Rohrdurchmessern rasch zum Verstopfen des Rohres oder zum Verhaken der Katalysatorteilchen.

Der vorliegenden Erfindung liegt daher die Aufgabe zu Grunde, ein Verfahren anzugeben, mit dem vertikale Rohre geringeren Rohrdurchmessers, wie sie für Gasphasenoxidationsreaktionen verwendet werden, mit Katalysatorteilchen befüllt werden können, wobei einerseits Katalysatorbruch- bzw. abrieb und andererseits Verstopfen und Verhaken der Katalysatorteilchen vermieden werden.

10

Diese Aufgabe wird durch ein Verfahren zum Befüllen eines vertikalen Rohres eines Innendurchmessers von 50 mm oder weniger, vorzugsweise 40 mm oder weniger, insbesondere 20 bis 30 mm, mit Katalysatorteilchen gelöst, bei dem man

eine Füllhilfe (3) in das vertikale Rohr (1) einbringt, wobei die Füllhilfe einen flexiblen länglichen Körper umfasst und das Verhältnis des Querschnitts des flexiblen länglichen Körpers zum Querschnitt des Rohres (1) 0,003 bis 0,08, vorzugsweise 0,005 bis 0,07 und besonders bevorzugt 0,01 bis 0,06, beträgt, und

die Katalysatorteilchen (2) in das Rohr (1) einfüllt.

15

Die Füllhilfe weist keine Elemente, wie Borsten oder Flügel, auf, die sich von dem flexiblen Körper radial nach außen erstrecken und deren Projektion auf eine Ebene quer zur Längsrichtung der Füllhilfe eine größere Fläche einschließt als der Querschnitt des flexiblen Körpers, vorzugsweise als der halbe Querschnitt des flexiblen Körpers. Soweit die Füllhilfe in bevorzugten Ausführungsformen sich senkrecht zur Längsrichtung der Füllhilfe erstreckende Abstandshalter aufweist, ist der Flächeninhalt ihrer Projektion vernachlässigbar gegenüber dem Querschnitt des flexiblen Körpers.

30

Überraschenderweise wurde nämlich gefunden, dass bei geringen Rohrquerschnitten eine ausreichende Verlangsamung der Fallgeschwindigkeit der Katalysatorteilchen bereits durch Anpassung des Querschnitts des flexiblen Körpers erreicht werden kann und zusätzliche Dämpfungselemente, die sich vom flexiblen Körper radial nach außen erstrecken und zum Verhaken der Katalysatorteilchen führen können, nicht erforderlich sind. Vermutlich beruht die Abbremsung der Katalysatorteilchen auf der Anregung von Querschwingungen des flexiblen Körpers oder der Bildung von Luftwirbeln.

35

40

Bei dem flexiblen länglichen Körper der Füllhilfe kann es sich beispielweise um eine Schnur, ein Band oder ein Seil handeln. Im Allgemeinen besteht der flexible Körper aus einer textilen Schnur oder einem textilen Band, z. B. aus einem Geflecht natürlicher oder synthetischer Fasern, wie Nylon. Seile aus Metalldrähten, z. B. ein Edelstahlseil, sind jedoch ebenfalls geeignet.

10

15

20

25

30

35

40

2

In bevorzugten Ausführungsformen weist der flexible längliche Körper einen im wesentlichen kreisförmigen Querschnitt auf. Vorzugsweise beträgt dabei das Verhältnis des Durchmessers des flexiblen länglichen Körpers zum Durchmesser des Rohres 0,1 bis 0,3, vorzugsweise 0,1 bis 0,25. So eignen sich z. B. Nylonschnüre mit Durchmessern von etwa 2,5 bis 5 mm, auch nicht-kreisförmige Querschnitte z.b. Bonder 0,5–2 / 5-10 mm.

Alternativ kann man auch Füllhilfen verwenden, deren flexibler länglicher Körper einen nicht-kreisförmigen, z.B. rechteckigen, Querschnitt aufweist. So können Bänder mit einer Dicke von 0,5 bis 2 mm und einer Breite von 5 bis 10 mm erfolgreich verwendet werden.

Vorzugsweise weist die Füllhilfe an ihrem unteren Ende ein starres Abschlusselement auf, dessen Dichte größer als die des flexiblen Körpers ist. Durch ein solches Abschlusselement wird das Einführen der Füllhilfe in das Rohr erleichtert.

Gemäß einer bevorzugten Ausgestaltung kann die Füllhilfe über die in das Rohr eingebrachte Länge uniform sein. Es handelt sich demnach um eine glatte Füllhilfe ohne Dämpfmittel, Abstandshalter oder dergleichen. Es hat sich bisweilen jedoch als vorteilhaft erwiesen, wenn die Füllhilfe beabstandet zueinander angeordnete, sich senkrecht zur Längsrichtung der Füllhilfe erstreckende Abstandshalter aufweist. Durch solche Abstandshalter wird sichergestellt, dass die Füllhilfe immer im Wesentlichen mittig im Rohr hängt. Die Abstandshalter sind vorzugsweise sehr dünn, um die Gefahr einer Verstopfung durch herunterfallende Katalysatorteilchen zu minimieren.

In der Regel geht man so vor, dass man die Füllhilfe beim Einfüllen der Katalysatorteilchen schrittweise oder kontinuierlich mit dem Fortschritt des Füllvorgangs aus dem Rohr herauszieht, so dass das untere Ende der Füllhilfe stets oberhalb der Füllhöhe der Katalysatorteilchen im Rohr angeordnet ist.

Es eignet sich eine Vorgehenswelse, bei der man nacheinander:

- die Füllhilfe so in das Rohr einbringt, dass sich das untere Ende der Füllhilfe in einer ersten Höhe befindet,
- Katalysatorteilchen bis unterhalb der ersten Höhe in das Rohr einfüllt,
- gegebenenfalls die Füllhilfe teilweise aus dem Rohr herauszieht, so dass sich das untere Ende der Füllhilfe in einer zweiten oder weiteren Höhe befindet, und Katalysatorteilchen bis unterhalb der zweiten oder weiteren Höhe in das Rohr einfüllt,
 - die Füllhilfe ganz aus dem Rohr herauszieht und das Rohr bis zur endgültigen Füllhöhe mit Katalysatorteilchen füllt.

15

20

25

30

35

40

4

In der einfachsten Ausführungsform bringt man die Füllhilfe in das Rohr ein, so dass ihr unteres Ende die Rohrlänge in einem beliebigen Verhältnis teilt, füllt eine erste Lage Katalysatorteilchen bis unterhalb des Endes der Füllhilfe in das Rohr ein, zieht die Füllhilfe aus dem Rohr und füllt eine zweite Lage (gleicher oder verschiedener) Katalysatorteilchen in das Rohr ein. Es hat sich herausgestellt, dass bei dieser Ausgestaltung des Verfahrens der Druckverlust um bis zu 10 % geringer ist als bei einem Befüllen ohne Füllhilfe.

Gemäß einer anderen Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens reicht die 10 Füllhilfe zunächst zu 2/3 der Länge des Rohres in dieses hinein, danach werden Katalysatorteilchen bis unterhalb des unteren Endes der Füllhilfe eingefüllt, die Füllhilfe wird dann auf 1/3 der Länge des Rohres herausgezogen, danach werden Katalysatorteilchen bis unterhalb des unteren Endes der Füllhilfe eingefüllt, die Füllhilfe wird dann ganz herausgezogen und danach wird das Rohr vollständig mit Katalysatorteilchen befüllt. Es hat sich herausgestellt, dass diese Ausgestaltung des Verfahrens bei Rohrlängen zwischen drei und acht Metern vorteilhaft ist. Beim Betrieb des Rohrreaktors waren die Druckverluste um bis zu 20 % geringer im Vergleich zu einem Befüllverfahren, bei dem die Katalysatorteilchen ohne Füllhilfe eingebracht werden.

Bei einer anderen Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Verfahrens reicht die Füllhilfe zunächst über die im Wesentlichen ganze Länge des Rohres in dieses hinein. Dann werden Katalysatorteilchen eingefüllt und gleichzeitig wird die Füllhilfe entsprechend dem Fortschritt der Füllhöhe der Katalysatorteilchen aus dem Rohr herausgezogen. Es hat sich herausgestellt, dass bei Rohrlängen zwischen drei und sechs Metern diese Ausgestaltung des Verfahrens der Druckverlust um bis zu 40 % geringer ist im Vergleich zu einem Befüllen ohne Füllhilfe.

Das Einfüllen der Katalysatorteilchen in das Rohr erfolgt vorzugsweise mit im Wesentlichen konstanter Geschwindigkeit, insbesondere mittels geeigneter Füllmaschinen. Derartige Füllmaschinen sind in der Regel zum gleichzeitigen Befüllen mehrer Rohre angepasst. Sie weisen einen Fülltrichter mit mehreren Kammern auf, aus denen die Katalysatorteilchen auf eine geneigte Schüttelrinne ausgestoßen werden. Wird die Schüttelrinne in Vibration versetzt, gleiten die Katalysatorteilchen gleichmäßig über die Rinne und fallen über Aussparungen in der Rinne in die darunter liegenden Rohre.

Die Katalysatorteilchen weisen im Allgemeinen einen (größten) Durchmesser von 2 bis 15 mm, vorzugsweise 3 bis 8 mm auf. Vollkatalysatoren bestehen aus einer katalytisch aktiven Masse, die – gegebenenfalls unter Verwendung geeigneter Bindemittel – durch Strangpressen, Tablettieren oder andere Verfahren zu Formkörpern, wie Strangpress-

lingen, Tabletten oder dergleichen geformt ist. Schalenkatalysatoren umfassen eine schalenförmig auf einen inerten Träger aufgebrachte katalytische Masse, in der Regel ein Mischmetalloxid. Sie können in Form von Kugeln, Ringen, Zylindern, Würfeln, Quadern oder anderen geometrischen Körpern vorliegen.

5

10

20

25

30

35

Solche Katalysatoren sind an sich bekannt und dienen z. B. der Herstellung ungesättigter aliphatischer Carbonsäuren oder Aldehyde wie Acrylsäure, Methacrylsäure oder Acrolein, durch Gasphasenoxidation von Aldehyden, Alkanen oder Alkenen; der Herstellung von Nitrilen wie Acrylnitril, Methacrylnitril durch Ammoxidation von Alkanen oder Alkenen oder der Herstellung aromatischer Carbonsäuren oder –anhydride, wie Benzoesäure oder Phthalsäureanhydrid durch Gasphasenoxidation aromatischer Kohlenwasserstoffe wie Toluol, o-Xylol oder Naphthalin. Weitere Katalysatoren sind Katalysatoren, die Hydrierungen unterschiedlichster Art katalysieren, oder Katalysatoren für die Methanolsynthese aus Synthesegas.

15

Es hat sich überraschenderweise gezeigt, dass beim Befüllen von Rohren nach dem erfindungsgemäßen Verfahren gegenüber dem Befüllen ohne Zuhilfenahme einer Füllhilfe eine weniger dicht gepackte, lockere Schüttung mit geringerem Schüttgewicht erzeugt wird. Hierdurch wird beim Betrieb des befüllten Rohres der Druckverlust beim Durchströmen eines Gases vorteilhafterweise verringert. Durch den geringeren Druckverlust kann beim Betrieb des Reaktors Kompressionsenergie eingespart werden, da das dem Reaktor zugeführte Gas auf ein geringeres Druckniveau komprimiert werden muss. Zudem hat eine lockere Katalysatorschüttung die positive Eigenschaft, dass die Reaktionszone im Rohr über eine größere Länge hinweg verteilt ist, was bei stark exothermen Umsetzungen zu geringeren Temperaturanstiegen im Rohr unter Reaktionsbedingungen führt. Beim Befüllen von Rohren mit größerem Durchmesser, wie den Steam-Reformer-Rohren des eingangs genannten Standes der Technik, werden unter Verwendung von Füllhilfen dagegen höher geordnete Packungen mit höherem Schüttgewicht der Katalysatorschüttung erhalten als ohne Füllhilfe.

Die Erfindung wird nun anhand von Ausführungsbeispielen und den beigefügten Zeichnungen erläutert.

Fig. 1 zeigt einen Schnitt durch ein Rohr, in das eine Füllhilfe gemäß einer ersten Ausgestaltung eingehängt ist und

Fig. 2 zeigt einen Schnitt durch ein Rohr, in das eine Füllhilfe gemäß einer zweiten Ausgestaltung eingehängt ist.

Bei den im Folgenden geschilderten Ausführungsbeispielen wird ein Rohr 1 mit Katalysatorteilchen 2 befüllt. Eine Vielzahl von parallelen Rohren 1 bilden einen Rohrbündel-

reaktor, der zur Durchführung von Gasphasenoxidationsreaktionen geeignet ist. Vor dem Befüllen des Rohrs 1 wird eine flexible Schnur 3, die als Füllhilfe dient, in das Rohr eingebracht. Bei der in Fig. 1 gezeigten Schnur handelt es sich um eine glatte Schnur ohne Abstandshalter, bei der in Fig. 2 gezeigten Schnur handelt sich um eine Schnur, in die in regelmäßigen Abständen Abstandshalter 5 eingebracht sind. Nachdem die Schnur 3 in das Rohr 1 eingebracht wurde, werden Katalysatorteilchen 2 in das Rohr 1 geschüttet. Als Fördereinrichtung 6 für die Katalysatorteilchen 2 kann entweder eine Rüttelrinne oder ein Bandförderer verwendet werden. Im übrigen lassen sich durch Zusammenschluss von mehreren, parallel arbeitenden Fördereinrichtungen beliebig viele Rohre zeitgleich befüllen. Dabei können automatische Abwickeleinrichtungen verwendet werden, welche die Schnüre 3 in die Rohre 1 einbringen und wieder herausziehen.



5

10

25

Die Erfindung wird durch die folgenden Beispiele näher veranschaulicht. In den Beispielen erfolgte das Befüllen der Rohre mittels Befüllmaschinen, bei denen die Katalysatorteilchen mittels Vibration aus einem Vorratsbehälter über eine Schüttrinne in das Rohr gefüllt wird.

20 Beispiel 1 (Vergleichsbeispiel)

Man befüllte ein Rohr mit einem Innendurchmesser von 25 mm und einer Länge von 4500 mm ohne Füllhilfe mit 2160 g eines Katalysators (Ringform; Außendurchmesser x Höhe x Innendurchmesser: 7 x 7 x 4 mm). Der Füllvorgang dauerte etwa1 min. Man bestimmte den Differenzdruck, der sich beim Durchleiten von 2000 NI/h Luft (20 °C) einstellte.



| ersuch Nr. Füllhöhe (cm) | | Differenzdruck (mbar) | |
|--------------------------|-----|-----------------------|--|
| 1 | 370 | 84 | |
| 2 | 368 | 96 | |
| 3 | 370 | 100 | |
| 4 | 370 | 94 | |
| 5 | 365 | 91 | |
| 6 | 368 | 108 | |
| 7 | 377 | 105 | |
| 8 | 374 | 95 | |
| 9 | 365 | 65 | |
| 10 | 366 | 93 | |
| 11 | 366 | 96 | |
| 12 | 364 | 105 | |

| 13 | 364 | 0.7 |
|--------------------|--------|--------|
| | | 97 |
| 14 | 372 | 87 |
| 15 | 375 | 86 |
| 16 | 372 | 89 |
| 17 | 380 | 81 |
| 18 | 376 | 85 |
| 19 | 384 | 89 |
| 20 | 378 | 93 |
| 21 | 360 | 112 |
| 22 | 378 | 84 |
| 23 | 377 | . 90 |
| 24 | 381 | 91 |
| 25 | 375 | . 95 |
| 26 | 377 | 90 |
| 27 | 375 | 89 |
| 28 | 384 | 88 |
| 29 | 381 | 87 |
| 30 | 384 | 90 |
| Mittelwert | 373,20 | 91,73 |
| Min | 360,00 | 65,00 |
| Max | 384,00 | 112,00 |
| Standardabweichung | 6,68 | 8,96 |

Beispiel 2

Beispiel 1 wurde wiederholt, wobei man jedoch eine am Ende beschwerte Nylonschnur mit einem Durchmesser von 4 mm 2600 mm tief in das Rohr hängen ließ, 720 g Katalysator einfüllte, die Schur herauszog, so dass sie 1200 mm tief im Rohr hing, weitere 720 g Katalysator einfüllte, die Schur entfernte und weitere 720 g Katalysator einfüllte. Der Füllvorgang dauerte etwa 20 s für jede der eingefüllten Lagen.

10

| Versuch Nr. | Füllhöhe (cm) | Differenzdruck (mbar) | |
|-------------|---------------|-----------------------|--|
| 1 | 385 | 71 | |
| 2 | 380 | 80 | |
| 3 | 382 | 69 | |
| 4 | 380 | 75 | |
| 5 | 374 | 84 | |
| 6 | 378 | 76 | |

| 7 | 391 | 72 |
|--------------------|--------|-------|
| 8 | 387 | 84 |
| 9 | 376 | 74 |
| 10 | 375 | 72 |
| 11 | 387 | 72 |
| 12 | 382 | 71 |
| 13 | 370 | 89 |
| 14 | 388 | 74 |
| 15 | 387 | 69 |
| 16 | 390 | 64 |
| 17 | 391 | 69 |
| 18 | 378 | 86 |
| 19 | 376 | 76 |
| 20 | 375 | 52 |
| 21 | 388 | 67 |
| 22 | 394 | 70 |
| 23 | 394 | 71 |
| 24 | 386 | 68 |
| 25 | 374 | 77 |
| 26 | 384 | 76 |
| 27 | 380 | 67 |
| 28 | 385 | 68 |
| 29 | 394 | 72 |
| 30 | 385 | 76 |
| Mittelwert | 383,14 | 72,93 |
| Min | 370,00 | 52,00 |
| Max | 394,00 | 89,00 |
| Standardabweichung | 6,79 | 7,27 |



Beispiel 3

Beispiel 1 wurde wiederholt, wobei man jedoch eine am Ende beschwerte Nylonschnur mit einem Durchmesser von 4 mm 2000 mm tief in das Rohr hängen ließ, 1080 g Katalysator einfüllte, die Schur entfernte und weitere 1080 g Katalysator einfüllte. Der Füllvorgang dauerte etwa 30 s für jede der eingefüllten Lagen.

| Versuch Nr. | Füllhöhe (cm) | Differenzdruck (mbar) |
|-------------|---------------|-----------------------|
| 1 | 366 | 94 |

| 3 | | | | |
|--------------------|--------|-------|--|--|
| 2 | 382 | 84 | | |
| 3 | 382 | 83 | | |
| 4 | 368 | 91 | | |
| 5 | 368 | 95 | | |
| 6 | 382 | 76 | | |
| 7 | 382 | 84 | | |
| 8 | 371 | 83 | | |
| 9 | 371 | 84 | | |
| 10 | 375 | 80 | | |
| 11 | 372 | 72 | | |
| 12 | 379 | 87 | | |
| 13 | 381 | 79 | | |
| 14 | 383 | 78 | | |
| 15 | 377 | 79 | | |
| 16 | 384 | 82 | | |
| 17 | 371 | 86 | | |
| 18 | 371 | 85 | | |
| 19 | 382 | 79 | | |
| 20 | 380 | 78 | | |
| 21 | 385 | 81 | | |
| 22 | 385 | 82 | | |
| 23 | 382 | 83 | | |
| 24 | 373 | 85 | | |
| 25 | 371 | 95 | | |
| 26 | 371 | 86 | | |
| 27 | 372 | 88 | | |
| 28 | 380 | 78 | | |
| 29 | 381 | 77 | | |
| 30 | 371 | 94 | | |
| Mittelwert | 377,00 | 83,24 | | |
| Min | 366,00 | 72,00 | | |
| Max | 385,00 | 95,00 | | |
| Standardabweichung | 5,82 | 5,62 | | |



5 Beispiel 1 wurde wiederholt, wobei man jedoch eine am Ende beschwerte Nylonschnur mit einem Durchmesser von 4 mm 4300 mm tief in das Rohr hängen ließ. Man füllte





10

2160 g Katalysator ein und zog die Schur kontinuierlich mit dem Füllfortschritt aus dem Rohr. Der Füllvorgang dauerte etwa 1 min.

| Versuch Nr. | Füllhöhe (cm) | Differenzdruck (mbar) |
|--------------------|---------------|-----------------------|
| 1 | 395 | 58 |
| 2 | 404 | 56 |
| 3 | 405 | 56 |
| 4 | 398 | 61 |
| 5 | 394 | 62 |
| 6 | 405 | 63 |
| 7 | 413 | 65 |
| 8 | 400 | 59 |
| 9 | 400 | 61 |
| 10 | 402 | 57 |
| 11 | 399 | 55 |
| 12 | 404 | 65 |
| 13 | 410 | 57 |
| 14 | 408 | 51 |
| 15 | 405 | 54 |
| 16 | 409 | 52 |
| 17 | 399 | 51 |
| 18 | 397 | 58 |
| 19 | 408 | 52 |
| 20 | 408 | 59 |
| 21 | 411 | 64 |
| 22 | 411 | 55 |
| 23 | 409 | 52 |
| 24 | 400 | 52 |
| 25 | 398 | 56 |
| 26 | 398 | 57 |
| 27 | 400 | 58 |
| 28 | 407 | 54 |
| 29 | 409 | 54 |
| 30 | 399 | 57 |
| Mittelwert | 403,66 | 57,03 |
| Min | 394,00 | 51,00 |
| Max | 413,00 | 65,00 |
| Standardabweichung | 5,35 | 4,19 |





Man erkennt, dass die Verwendung der Füllschnur zu einer weniger dichten (geringere Druckdifferenz) und gleichmäßigeren Befüllung (geringere Standardabweichung des Differenzdrucks) führt, wobei Beispiel 4 die besten Ergebnisse lieferte.

5

Beispiel 5

Man ließ eine 50 ml-Portion eines Katalysators (Ringform; Außendurchmesser x Höhe x Innendurchmesser: 5,5 x 3 x 3 mm) in ein Rohr mit einem Innendurchmesser von 21 mm und einer Länge von 6400 mm fallen und bestimmte den Anteil des Katalysatorbruchs.



| Versuch | Ohne Füllhilfe | Mit eingebrachter Nylon- |
|---------|----------------|----------------------------|
| | | schnur (4 mm Durchmes- |
| | | ser; 3500 mm Einhängtiefe) |
| 1 | 15,7 % | 5,2 % |
| 2 | 12,7 % | 3,8 % |

15

Beispiel 6 (Vergleichsbeispiel)

Man befüllte ein Rohr mit einem Innendurchmesser von 21 mm und einer Länge von 6400 mm mit einem Katalysator (Ringform; Außendurchmesser x Höhe x Innendurchmesser: 5,5 x 3 x 3 mm) bis zu einer Füllhöhe von 6000 mm. Der Füllvorgang dauerte etwa 4 min.



| Versuch | Füllmenge (g) | Schüttgewicht (kg/l) | Differenzdruck |
|------------|---------------|----------------------|----------------|
| | | | (mbar) |
| 1 | 1432 | 0,689 | 1146 |
| 2 | 1412 | 0,679 | 1185 |
| 3 | 1410 | 0,678 | 1174 |
| 4 | 1420 | 0,683 | 1180 |
| 5 | 1423 | 0,685 | 1178 |
| 6 | 1422 | 0,684 | 1175 |
| 7 | 1422 | 0,684 | 1188 |
| 8 | 1420 | 0,683 | 1169 |
| 9 | 1422 | 0,684 | 1172 |
| Mittelwert | | 0,683 | 1174 |

Beispiel 7

5

Beispiel 6 wurde wiederholt, wobei man jedoch eine am Ende beschwerte Nylonschnur mit einem Durchmesser von 4 mm 3500 mm tief in das Rohr hängen ließ, 630 g Katalysator einfüllte, die Schur entfernte und weitere 620 g Katalysator einfüllte und dann die Katalysatormenge auf eine Füllhöhe von 6000 mm ergänzte. Der Füllvorgang dauerte etwa 2 min für jede der eingefüllten Lagen.

| Versuch | Füllmenge (g) | Schüttgewicht (kg/l) | Differenzdruck |
|------------|---------------|----------------------|----------------|
| | , | • | (mbar) |
| 1 | 1402 | 0,675 | 1151 |
| 2 | 1403 | 0,675 | 1099 |
| 3 | 1401 | 0,674 | 1114 |
| 4 | 1398 | 0,673 | 1115 |
| 5 | 1401 | 0,674 | 1112 |
| 6 | 1404 | 0,676 | 1127 |
| 7 | 1401 | 0,674 | 1109 |
| 8 | 1405 | 0,676 | 1142 |
| 9 | 1404 | 0,676 | 1128 |
| Mittelwert | | 0,675 | 1122 |

10

Beim Vergleich von Beispiel 6 und Beispiel 7 erkennt man, dass die Katalysatorschüttung im Beispiel 7 lockerer ist (geringeres Schüttgewicht) und zu einem geringeren Differenzdruck führt.



Patentansprüche

1. Verfahren zum Befüllen eines vertikalen Rohres (1) eines Innendurchmessers von 50 mm oder weniger mit Katalysatorteilchen (2), bei dem man

5

- eine Füllhilfe (3) in das vertikale Rohr (1) einbringt, wobei die Füllhilfe einen flexiblen länglichen Körper umfasst und das Verhältnis des Querschnitts des flexiblen länglichen Körpers zum Querschnitt des Rohres (1) 0,003 bis 0,08 beträgt, und
- die Katalysatorteilchen (2) in das Rohr (1) einfüllt.

10

2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei der flexible längliche Körper einen im wesentlichen kreisförmigen Querschnitt aufweist.

15

- 3. Verfahren nach Anspruch 2, wobei das Verhältnis des Durchmessers des flexiblen länglichen Körpers zum Durchmesser des Rohres (1) 0,005 bis 0,07 beträgt.
- 4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der flexible längliche Körper aus einer textilen Schnur oder einem textilen Band besteht.
- 5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Füllhilfe (3) ein starres Abschlusselement (4) aufweist, dessen Dichte größer als die des flexiblen Körpers ist.
- 6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Füllhilfe (3) beabstandet zueinander angeordnete, sich senkrecht zur Längsrichtung der Füllhilfe (3) erstreckende Abstandshalter (5) aufweist.



35

- 7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei man die Füllhilfe (3) beim Einfüllen der Katalysatorteilchen (2) herauszieht, so dass das untere Ende der Füllhilfe stets oberhalb der Füllhöhe der Katalysatorteilchen (2) im Rohr (1) angeordnet ist.
- 8. Verfahren nach Anspruch 7, wobei man nacheinander:
 - die Füllhilfe (3) so in das Rohr (1) einbringt, dass sich das untere Ende der Füllhilfe (3) in einer ersten Höhe befindet,
 - Katalysatorteilchen (2) bis unterhalb der ersten Höhe in das Rohr (1) einfüllt,
 - gegebenenfalls die Füllhilfe (3) teilweise aus dem Rohr (1) herauszieht, so dass sich das untere Ende der Füllhilfe (3) in einer zweiten oder weiteren Höhe be-

AE 20030053 M/44077

- findet, und Katalysatorteilchen (2) bis unterhalb der zweiten oder weiteren Höhe in das Rohr (1) einfüllt,
- die Füllhilfe (3) ganz aus dem Rohr (1) herauszieht und das Rohr (1) bis zur endgültigen Füllhöhe mit Katalysatorteilchen füllt.
- 5
- 9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Katalysatorteilchen Formkörper aus einer katalytisch aktiven Masse umfassen.
- 10. Verfahren nach einem der Ansprüche 1 bis 8, wobei die Katalysatorteilchen eine
 schalenförmig auf einen inerten Träger aufgebrachte katalytische Masse umfassen.





Zusammenfassung

Beschrieben wird ein Verfahren zum Befüllen eines vertikalen Rohres eines Innendurchmessers von 50 mm oder weniger mit Katalysatorteilchen, bei dem man eine Füllhilfe in das vertikale Rohr einbringt, wobei die Füllhilfe einen flexiblen länglichen Körper umfasst und das Verhältnis des Querschnitts des flexiblen länglichen Körpers zum Querschnitt des Rohres 0,003 bis 0,08 beträgt, und die Katalysatorteilchen in das Rohr einfüllt.



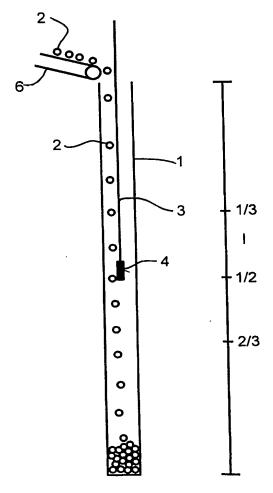
5



1/2

FIG.1





2/2

FIG.2



